

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 63-185803

(43)Date of publication of application : 01.08.1988

(51)Int.Cl.

C01B 13/34

C01B 33/12

C01F 7/16

(21)Application number : 62-052987

(71)Applicant : UBE IND LTD

(22)Date of filing : 10.03.1987

(72)Inventor : NISHIDA AKIO

UEKI AKIRA

MASUDA HIDENORI

GOTO YOSHIKAZU

(30)Priority

Priority number : 61185157

Priority date : 08.08.1986

Priority country : JP

(54) SPHERICAL COMPOUND METAL OXIDE PARTICLE AND PRODUCTION THEREOF

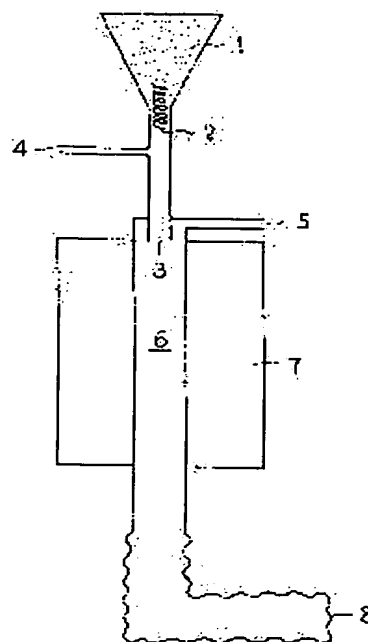
(57)Abstract:

PURPOSE: To obtain the titled particles having excellent dispersibility, fluidity and packing property and free from aggregation and fusion of particles, by blasting and burning a raw material alloy powder corresponding to a specific compositional ratio through a burner nozzle in an atmosphere containing O₂ gas.

CONSTITUTION: A powdery alloy 1 having particle diameter of $\leq 200\mu$ and a composition corresponding to the compositional ratio of the metal of the objective compound metal oxide is supplied at a constant rate with a feeder 2 and blasted into a reaction chamber 6 through a burner nozzle 3 by the aid of gas introduced from an inlet port 4 for alloy powder ejection gas.

Separately, O₂ gas is introduced into the reaction chamber 6 through an O₂-introduction port 5 and the powder is heated with an electric furnace 7 to effect the ignition and combustion. When the combustion reaches stable state, the heating with the furnace 7 is stopped and the reaction is continued by the heat of combustion

of the alloy powder. The titled particles of spinel, forsterite, mullite, etc., having an aspect ratio of 1.0W1.3 and containing particles of 0.02W0.30 μ in diameter accounting for $\geq 85\text{wt.}\%$ of the whole particles are collected with a bag filter 8. The atomic ratio of the metal of the alloy is 1:2 (Mg:Al) for spinel, 2:1 (Mg:Si) for forsterite and 3:1 (Al:Si) for mullite.



LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of

Best Available Copy

rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

⑬ 日本国特許庁(J P)

⑭ 特許出願公開

⑯ 公開特許公報(A)

昭63-185803

① Int. Cl.

C 01 B 13/34
33/12
C 01 F 7/16

識別記号

庁内整理番号

7508-4G
A-7918-4G
6939-4G

② 公開 昭和63年(1988)8月1日

審査請求 未請求 発明の数 2 (全6頁)

⑥ 発明の名称 球状複合金属酸化物粒子及びその製法

⑦ 特 願 昭62-52987

⑧ 出 願 昭62(1987)3月10日

優先権主張 ⑨ 昭61(1986)8月8日 ⑩ 日本(J P) ⑪ 特願 昭61-185157

⑫ 発 明 者 西 田 明 生 山口県宇部市大字小串1978番地の5 宇部興産株式会社宇部研究所内

⑬ 発 明 者 植 木 明 山口県宇部市大字小串1978番地の5 宇部興産株式会社宇部研究所内

⑭ 発 明 者 増 田 英 典 山口県宇部市大字小串1978番地の5 宇部興産株式会社宇部研究所内

⑮ 発 明 者 後 藤 義 和 山口県宇部市大字小串1978番地の5 宇部興産株式会社宇部研究所内

⑯ 出 願 人 宇 部 興 産 株 式 有 限 公 司 山口県宇部市西本町1丁目12番32号

明 細 書

1. 発明の名称

球状複合金属酸化物粒子及びその製法

2. 特許請求の範囲

(1) 0.02~0.30 μ mの範囲内の直径を有する粒子が85重量%以上であり、粒子の短軸径に対する長軸径の比が1.0~1.3の範囲内であることを特徴とする球状複合金属酸化物粒子。

(2) 複合金属酸化物における金属の組成比に対応する組成の合金粉末を、バーナー/スルから噴出させ、酸素含有ガス雰囲気下に焼成させることを特徴とする球状複合金属酸化物粒子の製法。

(3) 合金粉末の粒子径が200 μ m以下であることを特徴とする特許請求の範囲第(2)項に記載の球状複合金属酸化物粒子の製法。

(4) 合金粉末の焼成が合金粉末自身の焼成熱を利用して行なわれる特許請求の範囲第(2)項に記載の球状複合金属酸化物粒子の製法。

3. 発明の詳細な説明

(産業上の利用分野)

本発明は、顔料、触媒、フィラー、多孔体焼成材料、焼結用原料、焼結助剤、センサー用原料、固性材料等としての用途に供することのできる球状複合金属酸化物粒子およびその製法に関するものである。

(従来技術及びその問題点)

近年、種々の産業分野で、分散性、流動性及び充填性に優れた粉末に対する要求はますます高まっている。この種粉末の一つとして複合金属酸化物粉末が考えられるが、従来の複合金属酸化物は粒子形状が不定形であったり、粒子同志の凝集あるいは融着が激しいため、上記特性を満足できる粉末とは必ずしも言い難い。

たとえば、固相法により得られた複合金属酸化物は、粉砕処理が必要であり、そのために構成粒子は不定形である。

また、「産業協会誌」86(9)P433-434(1978)に開示された均一沈澱法ならびに「産業協会誌」91(4)P164-170(1983)に開示された噴霧焼成法により得

られた複合金属酸化物は二次凝集粒子を形成するため、分散性、流動性、及び充填性に劣る。

さらに、「日本化学会誌」№11P1758-1762(1982)に記載の気相法により得られた複合金属酸化物粒子は、単一金属酸化物粒子を含有するため、2種類以上の形状を有し、融着している。

その他に、「窯業協会誌」90(10)P603-609(1982)に開示された水中火花放電により得られた複合金属酸化物は、不定形粒子が融着している。

以上のように、従来の複合金属酸化物は、(1)一次粒子が不定形であること、(2)これらが凝集あるいは融着していること等の問題点があるため、多くの産業用途におけるこれらの物質の有用性が損われていた。

(問題点を解決するための手段)

本発明は、粒子同志の凝集あるいは融着がなく、粒子形状が球状であるため、分散性、流動性および充填性に優れた複合金属酸化物粒子およびその

イトでは $Mg-Si$ (原子比2:1)、ムライトでは $Al-Si$ (原子比3:1)がそれぞれ合金粉末として使用される。

合金粉末を用いずに、単一組成の金属粉末同志を、目的とする複合金属酸化物を形成する組成比となるように混合して得られる混合物を燃焼させると、原料単一組成金属に相当する酸化物微粉末が生成し、ついでこの酸化物が反応することにより複合酸化物が生成するため、得られる生成物は複合酸化物と単一組成の酸化物の混合物となる。

原料として合金粉末を用いる本発明の製法によれば、合金は元素が原子のオーダーで混合しているため、合金粉末が燃焼する際に直接複合金属酸化物が生成し、目的とする複合金属酸化物微粉末を製造することが可能となる。

本発明の製法で使用する合金粉末の粒子径は、 $200\mu m$ 以下であることが好ましい。粒子径がこれ以上大きいと燃焼性が悪くなり、未反応合金粉末が複合金属酸化物に残存するようになる。

この合金粉末はバーナーノズルから噴出させて

製法を提供する。

本発明の球状複合金属酸化物粒子は、85重量%以上が $0.02\sim 0.30\mu m$ の範囲内の直径を有し、かつ短軸径に対する長軸径の比が $1.0\sim 1.3$ 、好ましくは $1.0\sim 1.2$ の範囲内である粒子で構成されている。

上記複合金属酸化物の具体例としては、スピネル($MgO \cdot Al_2O_3$)、フォルステライト($2MgO \cdot SiO_2$)、ムライト($3Al_2O_3 \cdot 2SiO_2$)、スタアタイト($MgO \cdot SiO_2$)、 $Al_2O_3 \cdot SiO_2$ 、 $MgO \cdot TiO_2$ 、 $MgO \cdot 2TiO_2$ 、 $2MgO \cdot TiO_2$ 、 $BeO \cdot Al_2O_3$ 、 $2BWO \cdot SiO_2$ 等が挙げられる。

前記の球状複合金属酸化物粒子は、本発明の製法に従って製造することができる。

本発明の製法においては、原料として上記球状複合金属酸化物粒子における金属の組成比に対応する組成の合金粉末が使用され、例えばスピネルでは $Mg-Al$ (原子比1:2)、フォルステラ

酸含有ガス雰囲気下に浮遊させて燃焼させる。合金粉末は一般に噴出用ガスとしては、窒素、アルゴンのような不活性ガスが好ましく使用される。合金粉末の着火・燃焼は合金の燃焼熱を利用する。合金粉末の燃焼熱は 5000 cal/g 以上と大きいので、火炎温度は $5000^\circ C$ 以上となる。そのため、一旦生成した複合金属酸化物粒子は火炎内で溶融する(スピネル、フォルステライトおよびムライトの融点はそれぞれ $2135^\circ C$ 、 $1890^\circ C$ 、 $1880^\circ C$)。その後、急冷することにより、回収された粒子は球状となる。また、複合金属酸化物の火炎内滞留時間は $0.1\sim 1$ 秒と非常に短いため、溶融粒子の凝集あるいは融着は起こらない。

合金粉末を安定に燃焼させるためには、火炎の伝播による着火だけでなく、反応室壁や火炎からの輻射熱による着火を利用することが望ましい。このためには、反応室は断熱構造にして、合金の燃焼熱が蓄積されるようにすることが好ましい。

通常、金属の燃焼において着火源としては抵抗

加熱、高周波遊動加熱、化学炎、アーク放電、レーザー等があるが、本発明は前述の様に合金の燃焼熱を利用するため、通常の着火源を用いる場合に生じる欠点、例えば(1)反応装置が複雑になり、設備費が高くなるとか、(2)電気、ガス等を使用するため、製造コストが多角なるとかの欠点を解消することができる。

得られる球状複合金金属酸化物粒子の粒径は合金粉末の燃焼状態、例えば含酸素ガスの供給量を変化させることによって制御することができる。

その一例を示すと、後述する実施例の結果からわかるように、合金粉末に対する酸素の供給量を増加させると、得られる複合金金属酸化物の粒子径が小さくなる。

次に本発明を実施する際に用いる反応装置の概略図を第1図に示す。

合金粉末1はフィーダー2によって定量供給され、合金粉末噴出用ガス導入口4から導入されたガスによってバーナーノズル3から反応室6へ噴出される。一方、酸素は酸素導入口5から反応室へ導

入される。合金粉末は燃焼が安定するまでは電気炉7により加熱され着火されるが、燃焼が安定したところで電気炉による加熱は止める。合金粉末の燃焼により生成した球状複合金金属酸化物粒子はバグフィルター8によって捕集される。

【実施例】

次に本発明の実施例を示す。

実施例1

第1図に示す反応装置を用いて複合金金属酸化物を製造した。バーナーノズル口径は6mmφ、反応室の内径は7.0mmφ、長さが800mmである。

合金粉末(100~200メッシュ)はフィーダーにより7g/分の割合で定量供給し、3Nℓ/分の合金粉末噴出用ガス(アルゴンガス)とともにバーナーノズルから噴出された。また、酸素は15Nℓ/分の割合で反応室へ導入した。反応室は電気炉により1200℃に加熱され、この輻射により合金粉末を着火し、燃焼が安定したところで、電気炉による加熱を停止した。合金粉末の燃焼により生成した球状複合金金属酸化物粒子はバグ

フィルターで捕集した。また、得られた球状複合金金属酸化物粒子は透過型電子顕微鏡で粒子径、長軸径及び短軸径を測定し、X線回折によって生成物を固定し、窒素吸着法により比表面積を測定した。合金粉末の種類を変えて行なった実験結果を第1表に示す。また、得られたスピネル粉末の透過型電子顕微鏡写真を第2図に示す。

表 1

合金の種類	生成物	比表面積	粒子径	長軸径/短軸径
Mg-Al (原子比 1:2)	MgAl ₂ O ₄ (2MgO·Al ₂ O ₃)	6 m ² /g	0.04~0.22	1.0~1.5
Mg-Si (原子比 2:1)	MgSiO ₃ (2MgO·SiO ₂)	6 m ² /g	0.02~0.29	1.0~1.2
Al-Si (原子比 3:1)	Al ₂ SiO ₅ (3Al ₂ O ₃ ·2SiO ₂)	6 m ² /g	0.02~0.29	1.0~1.2

第 2 表

	実施例1	比較例
嵩 密 度 (g/cm ³)	0.44	0.21
タップ密度 (g/cm ³)	0.66	0.47
安息角 (度)	43	46
圧縮密度 (g/cm ³)	2.53	1.65
成形体の相対密度(%)	70.1	46.1

実施例1で得られたスピネル粉末の高密度、タップ密度及び安息角を測定した結果を第2表に示す。高密度は粉末を100ccの容器に充填したときの見掛密度であり、タップ密度は100ccの粉末を容器に充填した後、1回/秒の割合で180回タップしたときの密度であり、安息角はスピネル粉末を板より7.5cm上部から落下したときの堆積粉末の積線と板とのなす角度である。

さらに、実施例1で得られたスピネル粉末を100kg/cm²で一軸加圧した後、1.5t/cm²でラバープレスして製造した成形体の密度及び相対密度(理論密度を3.58g/cm³とした)を第2表に併記する。

比較のため水中火花放電法により得られた市販のスピネル粉末の物性を第2表に示す。

実施例2

実施例1において合金粉末をMg-Al(原子比1:2)とし、酸素の流量を変えた以外は実施例1と同様に操作してスピネル粉末を製造した。その結果を第3表に示す。尚、実施例1の結果を併記する。

番 3 表

酸素流量	粒子径(μm)	長軸径/短軸径
5NL/min	0.05~0.29	1.0~1.2
15NL/min	0.04~0.22	1.0~1.3
30NL/min	0.02~0.21	1.0~1.3

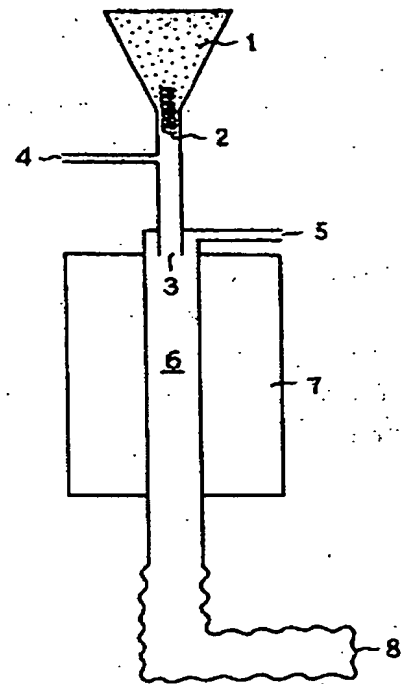
4. 図面の簡単な説明

第1図は本発明の実施の際に使用される反応装置の一例の概略図であり、第2図は実施例1で得られたスピネル粉末の粒子構造を示す図である。

3…バーナーノズル、5…酸素導入口、6…反応室。

特許出願人 宇部興産株式会社

第 1 図



手続補正書（自発）

昭和62年 7月 17日

特許庁長官殿

1. 事件の表示

特開昭62-52987号

2. 発明の名称

球状複合金属酸化物粒子及びその製法

3. 補正をする者

事件との関係 特許出願人

郵便番号 755

山口県宇部市西本町1丁目12番32号

(020) 宇部興産株式会社

代表者 清水 保夫

4. 補正の対象

明細書の発明の詳細な説明の欄

5. 補正の内容

(1) 第2ページ第4行、第5ページ第9行及び同第10行の「複合酸化物」を「複合金属酸化物」に補正する。

(2) 第4ページ第13行の「BwO」を「Be

0」に補正する。

(3) 第5ページ第19行の「複合金酸化物」を「複合金属酸化物」に補正する。

(4) 第6ページ第2行の「合金粉末は一般に」を「合金粉末は一般に噴出用ガスに同搬されてバーナーから噴出させる。」に補正する。

(5) 第7ページ第2行の「遊動」を「誘導」に補正する。

(6) 第7ページ第6行の「多角」を「高く」に補正する。

(7) 第7ページ第8行の「球複合金属酸化物」を「球状複合金属酸化物」に補正する。

(8) 第9ページ第4行の「固定」を「同定」に補正する。

以 上

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☐ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☒ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☒ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.